

Rec'd PCT/PTO 18 OCT 2004
PCT/JP03/04962

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

18.04.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 4月19日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-117285

[ST.10/C]:

[JP2002-117285]

出 願 人

Applicant(s):

宇部興産株式会社

REC'D 13 JUN 2003

WIPO

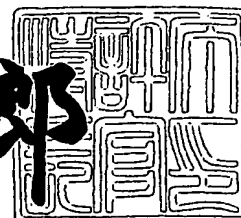
PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 5月27日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-3038885

【書類名】 特許願

【整理番号】 TSP020408

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C07C 69/42

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 5
 宇部興産株式会社 宇部研究所内

 【氏名】 山本 康仁

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 5
 宇部興産株式会社 宇部研究所内

 【氏名】 宮田 博之

【発明者】

 【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 5
 宇部興産株式会社 宇部研究所内

 【氏名】 古根川 唯泰

【特許出願人】

 【識別番号】 000000206

 【氏名又は名称】 宇部興産株式会社

 【代表者】 常見 和正

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 012254

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

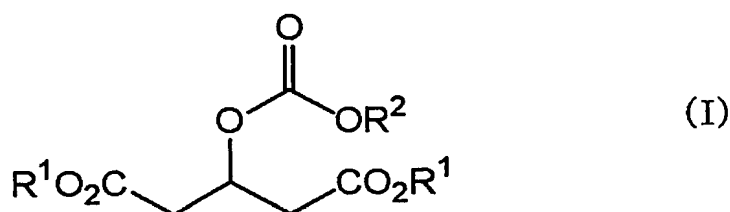
【発明の名称】 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体及びその製法

【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式 (I)

【化1】



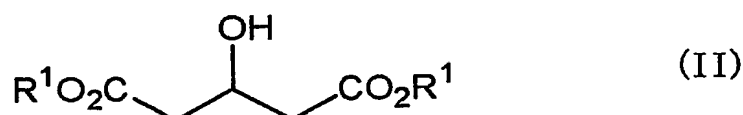
(式中、 R^1 は、アルキル基を示し、 R^2 は、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基又はアリール基を示す。)

で示される3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体。

【請求項2】

塩基の存在下、一般式 (II)

【化2】



(式中、 R^1 は、前記と同義である。)

で示される3-ヒドロキシグルタル酸ジエステルと一般式 (III)

【化3】



(式中、Xは、ハロゲン原子を示し、 R^2 は、前記と同義である。)

で示されるハロゲノギ酸エステルとを反応させることを特徴とする、請求項1記載の3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体の製法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、新規な 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体及びその製法に関する。3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体は、片方のエステル基を加水分解して光学活性 3-置換グルタル酸モノエステル誘導体とした後、公知の還元方法によって、医薬品の合成中間体として有用な光学活性 3-ヒドロキシグルタル酸モノエステルに容易に誘導することが出来る。

【0002】

【従来の技術】

本発明の 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体は、新規な化合物であり、従来までにその製法は全く知られていなかった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、即ち、新規な 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体及びその製法を提供するものである。

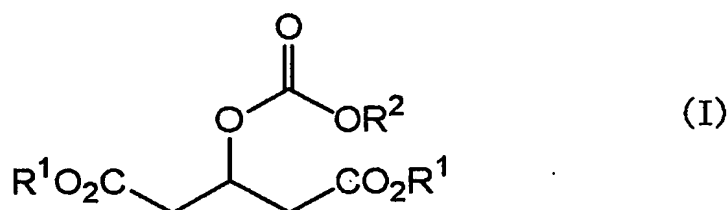
【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明の課題は、一般式 (I)

【0005】

【化 4】



【0006】

(式中、 R^1 は、アルキル基を示し、 R^2 は、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基又はアリール基を示す。)

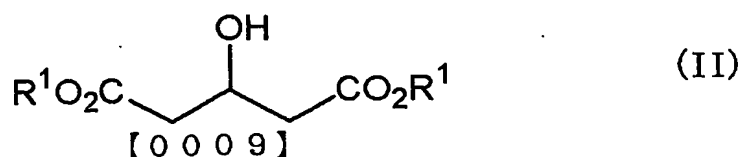
で示される 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体によって解決される。

【0007】

本発明の課題は、又、塩基の存在下、一般式 (II)

【0008】

【化5】



(式中、 R^1 は、前記と同義である。)

で示される3-ヒドロキシグルタル酸ジエステルと一般式 (III)

【0010】

【化6】



【0011】

(式中、Xは、ハロゲン原子を示し、 R^2 は、前記と同義である。)

で示されるハロゲノギ酸エステルとを反応させることを特徴とする、3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体の製法によっても解決される。

【0012】

【発明の実施の形態】

本発明における3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体は、前記の一般式 (I) で示される。その一般式 (I) において、 R^1 は、アルキル基を示す。

【0013】

前記アルキル基とは、(1) 「置換基を有していないアルキル基」又は(2) 「置換基を有するアルキル基」である。(1) の「置換基を有していないアルキル基」としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等の炭素数1～10のアルキル基(なお、これらの基は、各種異性体を含む)が挙げられるが、好ましくはメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*n*-オクチル基であり、更に好ましくはメチル基、エチル基である。(2) の「置換基を有するアルキル基」の置換基としては、例えば、フッ素原子、塩

素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子；ヒドロキシル基；メトキシル基、エトキシル基、プロポキシル基、ブトキシル基等の炭素数1～4のアルコキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のジアルキルアミノ基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；シアノ基等が挙げられるが、好ましくはフッ素原子、塩素原子、ヒドロキシル基、シアノ基である。このような置換基を有するアルキル基としては、具体的には、2-クロロエチル基、2, 2-ジクロロエチル基、2, 2, 2-トリクロロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-シアノエチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-ブromoエチル基、2-ジメチルアミノ基、2-クロロプロピル基、3-クロロプロピル基等が挙げられるが、好ましくは2-クロロエチル基、2, 2, 2-トリクロロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2-シアノエチル基である。

【0014】

又、 R^2 は、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基又はアリール基を示す。

【0015】

前記 R^2 のアルキル基とは、前記 R^1 のアルキル基と同義である。

【0016】

前記 R^2 のアルケニル基とは、例えば、ビニル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基、デセニル基等の炭素数2～10のアルケニル基が挙げられる。なお、これらの基は、各種異性体を含む。

【0017】

前記 R^2 のアラルキル基とは、（3）「置換基を有していないアラルキル基」又は（4）「置換基を有するアラルキル基」である。（3）の「置換基を有していないアラルキル基」としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）が挙げられる。（4）の「置換基を有するアラルキル基」の置換基としては、例えば、ヒドロキシル基；ニトロ基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子；メト

キシル基、エトキシル基、プロポキシル基、ブトキシル基、ペンチルオキシル基、ヘキシルオキシル基、ヘプチルオキシル基、オクチルオキシル基、ノニルオキシル基、デシルオキシル基等の炭素数1～10のアルコキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ベンジルオキシル基、フェネチルオキシル基等の炭素数7～10のアラルキルオキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；フェニルオキシル基等の炭素数6～10のアリールオキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む）；メトキシメトキシル基等の炭素数2～10のアルコキシアルコキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；メチルアミノ基、エチルアミノ基等のモノアルキルアミノ基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ジメチルアミノ基等のアルキルアミノ基（なお、これらの基は、各種異性体を含む）；ホルミルアミノ基、アセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等のアシルアミノ基が挙げられる。

【0018】

前記R²のアリール基とは、（5）「置換基を有していないアリール基」又は（6）「置換基を有するアリール基」である。（5）の「置換基を有していないアリール基」としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、チエニル基等が挙げられるが、好ましくはフェニル基、ナフチル基、更に好ましくはフェニル基である。（6）の「置換基を有するアリール基」の置換基としては、例えば、ヒドロキシル基；ニトロ基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨード原子等のハロゲン原子；メトキシル基、エトキシル基、プロポキシル基、ブトキシル基、ペンチルオキシル基、ヘキシルオキシル基、ヘプチルオキシル基、オクチルオキシル基、ノニルオキシル基、デシルオキシル基等の炭素数1～10のアルコキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ベンジルオキシル基、フェネチルオキシル基等の炭素数7～10のアラルキルオキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；フェニルオキシル基等の炭素数6～10のアリールオキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；メトキシメトキシル基等の炭素数2～10のアルコキシアルコキシル基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；メチルアミノ基、エチルアミノ基等のモノアルキルアミノ基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ジメチルアミノ

基等のジアルキルアミノ基（なお、これらの基は、各種異性体を含む。）；ホルミルアミノ基、アセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等のアシルアミノ基が挙げられる。

【0019】

前記の R^1 及び R^2 を有する 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体の具体例としては、例えば、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジエチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジプロピルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジブチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジペンチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジヘキシルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジヘプチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジオクチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジノニルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジデシルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジイソプロピルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ s-ブチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ t-ブチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジクロロメチルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジベンジルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ 4-ニトロベンジルエステル、
 、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ 4-トリフルオロメチルベンジルエステル、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ 4-クロロベンジルエステル、
 、
 3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ 4-ブロモベンジルエステル、
 、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ4-フルオロベンジルエステル、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジ4-メトキシベンジルエステル、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジビニルエステル、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジアリルエステル、

3-(2-メチルベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-メチルベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸メチルエステル

3-(4-メチルベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(2-メトキシベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-メトキシベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-メトキシベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(2-クロロベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-クロロベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-クロロベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(2-ブロモベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-ブロモベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-ブロモベンジル)オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル

ル、

3-(2-フルオロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-フルオロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-フルオロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(2-ニトロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-ニトロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-ニトロベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(2-メトキシベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(3-メトキシベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(4-メトキシベンジル) オキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-(t-ブトキシカルボニル) オキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-メトキシカルボニルグルタル酸ジメチルエステル、

3-イソプロポキシオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-フェノキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-ビニルオキシオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-アリルオキシオキシグルタル酸ジメチルエステル

等が挙げられるが、好ましくは、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル、

3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジエチルエステル

である。

【 0 0 2 0 】

本発明の反応において使用する 3-ヒドロキシグルタル酸ジエステルは、前記の一般式 (II) で示される。その一般式 (II) において、 R^1 は、前記と同義である。

【 0 0 2 1 】

前記の R^1 を有する 3-ヒドロキシグルタル酸ジエステル誘導体の具体例としては、例えば、

3-ヒドロキシグルタル酸ジメチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジエチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジプロピルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジブチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジペンチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジヘキシルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジヘプチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジオクチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジノニルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジデシルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジイソプロピルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ s-ブチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ t-ブチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジクロロメチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-ニトロベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-トリフルオロメチルベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-クロロベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-ブromoベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-フルオロベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジ 4-メトキシベンジルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジビニルエステル、

[illegible]

3-ヒドロキシグルタル酸ジメチルエステル、
3-ヒドロキシグルタル酸ジエチルエステル
が使用される。

【0022】

本発明の反応において使用するハロゲノギ酸エステルは、前記の一般式 (III)
) で示される。その一般式 (III) において、Xは、フッ素原子、塩素原子、臭
素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子であり、 R^2 は、前記と同義である。

【0023】

前記のX及び R^2 を有するハロゲノギ酸エステルの具体例としては、例えば、
クロロギ酸メチル、
クロロギ酸エチル、
クロロギ酸プロピル、
クロロギ酸イソブチル、
クロロギ酸 (2-ブロモエチル)、
クロロギ酸 (2, 2, 2-トリクロロエチル)、
クロロギ酸フェニル、
クロロギ酸 (p-トリル)、
クロロギ酸ニトロフェニル、
クロロギ酸 (p-クロロフェニル)、
クロロギ酸ビニル、
クロロギ酸アリル、
クロロギ酸ベンジル
等が挙げられる。

【0024】

前記ハロゲノギ酸エステルの使用量は、3-ヒドロキシグルタル酸ジエステル
1 mol に対して、好ましくは1.0~3.0 mol、更に好ましくは1.0~
1.5 mol である。

【0025】

本発明の反応において使用する塩基としては、第三級アミン等の有機塩基が好

適に使用され、例えば、トリエチルアミン、トリー n-プロピルアミン、トリー n-ブチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、N-メチルピペリジン、ピリジン、2, 6-ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等が挙げられるが、好ましくはピリジン、4-ジメチルアミノピリジン、更に好ましくは4-ジメチルアミノピリジンが使用される。なお、これらの塩基は、単独又は二種以上を混合して使用しても良い。

【0026】

前記塩基の使用量は、3-ヒドロキシグルタル酸ジエステル1 molに対して、好ましくは1.0~3.0 mol、更に好ましくは1.0~1.5 molである。

【0027】

本発明の反応は、溶媒の存在下又は非存在下において行われる。使用する溶媒としては、反応を阻害しないものならば特に限定されず、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素類；ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化脂肪族炭化水素類；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル等のカルボン酸エステル類；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン等のアミド類；アセトニトリル、プロピオニトリル等のニトリル類；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類；ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン等のエーテル類が挙げられるが、好ましくはハロゲン化脂肪族炭化水素類、更に好ましくはジクロロメタン、1, 2-ジクロロエタンが使用される。なお、これらの溶媒は、単独又は二種以上を混合して使用しても良い。

【0028】

前記溶媒の使用量は、反応液の均一性や攪拌性により適宜調節するが、3-ヒドロキシグルタル酸ジエステル1 gに対して、好ましくは2~50 ml、更に好ましくは5~20 mlである。

【0029】

本発明の反応は、例えば、窒素ガス雰囲気にて、3-ヒドロキシグルタル酸ジエステル、ハロゲノギ酸エステル、塩基及び溶媒を混合して、攪拌しながら反応させる等の方法によって行われる。その際の反応温度は、好ましくは $-20 \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、更に好ましくは $0 \sim 40^{\circ}\text{C}$ であり、反応圧力は特に制限されない。

【0030】

本発明の反応によって得られる3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体は、反応終了後、例えば、濾過、抽出、濃縮、再結晶、晶析、カラムクロマトグラフィー等の一般的な方法によって単離・精製される。

【0031】

【実施例】

次に、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらに限定されるものではない。

【0032】

実施例1 (3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステルの合成)

室温にて、3-ヒドロキシグルタル酸ジメチルエステル 1.01 g (5.78 mmol) をジクロロメタン 10 ml に溶解し、4-ジメチルアミノピリジン 847 mg (6.93 mmol) 及び塩化ベンジルオキシカルボニル $990\text{ }\mu\text{l}$ (6.93 mmol) を加え、 0°C で30分間、室温で1時間攪拌しながら反応させた。反応終了後、得られた反応混合物を減圧下で濃縮し、酢酸エチル 20 ml 及び水 10 ml を加え有機層を抽出した。有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥して、濾過後、減圧下で濃縮して油状物質を得た。得られた油状物質をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (Wakogel C-200 (商品名)、 n -ヘキサン/酢酸エチル $=5/1$ (容量比)) で精製し、3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステル 1.30 g (3-ベンジルアミノ-2-ペンテン二酸ジメチルエステル基準の単離収率 $=73\%$) を得た。

なお、3-ベンジルオキシカルボニルオキシグルタル酸ジメチルエステルは、以下の物性値で示される新規な化合物である。

【0033】

^1H -NMR (δ (ppm), CDCl_3) : 2.71-2.81 (m, 4H)
、 3.66 (s, 6H), 5.16 (s, 2H)、 5.43 (quintet,
1H)、 5.75 (m, 1H)、 7.33-7.37 (m, 5H)

^{13}C -NMR (δ (ppm), CDCl_3) : 38.2、 51.9、 69.8
、 70.7、 128.3、 128.57、 128.60、 135.1、 154.
1、 170.0

MS (EI) m/z : 310 (M^+)

MS (CI, $i\text{-C}_4\text{H}_{10}$) m/z : 311 (MH^+)

元素分析; Calcd: C, 58.05%; H, 5.86%

Found: C, 57.43%; H, 5.88%

【0034】

【発明の効果】

本発明により、新規な3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体及びその製法を提供することが出来る。

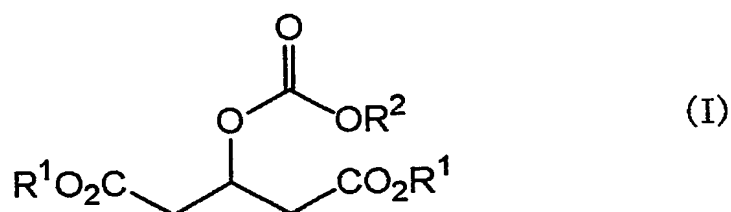
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明は、新規な 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体及びその製法を提供することを課題とする。

【解決手段】 本発明の課題は、一般式 (I)

【化 1】

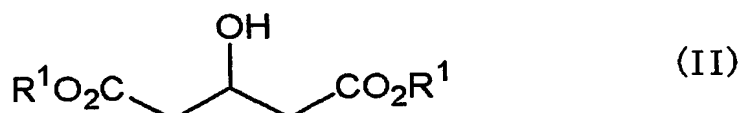


(式中、 R^1 は、アルキル基を示し、 R^2 は、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基又はアリール基を示す。)

で示される 3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体。によって解決される。

本発明の課題は、又、塩基の存在下、一般式 (II)

【化 2】



(式中、 R^1 は、前記と同義である。)

で示される 3-ヒドロキシグルタル酸ジエステルと一般式 (III)

【化 3】



(式中、X は、ハロゲン原子を示し、 R^2 は、前記と同義である。)

で示されるハロゲノギ酸エステルとを反応させることを特徴とする、3-置換オキシグルタル酸ジエステル誘導体の製法によっても解決される。

【選択図】 なし

特 2002-117285

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-117285
受付番号	50200573022
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成14年 4月22日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年 4月19日

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000206]

1. 変更年月日	2001年 1月 4日
[変更理由]	住所変更
住 所	山口県宇部市大字小串1978番地の96
氏 名	宇部興産株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.